



TITLE:

量子固体の結晶成長(第54回物性若手夏の学校(2009年度),講義ノート)

AUTHOR(S):

野村, 竜司

CITATION:

野村, 竜司. 量子固体の結晶成長(第54回物性若手夏の学校(2009年度),講義ノート). 物性研究 2010, 93(6): 935-955

ISSUE DATE:

2010-03-05

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/169254>

RIGHT:

量子固体の結晶成長

東京工業大学 野村竜司

はじめに

結晶成長の物理の理解にヘリウム結晶が大きな役割を果たしてきたことは、あまり知られていないかもしれない。自然界に存在する雪の結晶や水晶などと、極低温において超流動液体から成長する量子固体との間には、共通する普遍的物理が存在する。液体が超流動状態にあるためヘリウムの結晶は非常に素早く成長し、結晶成長一般の物理的基礎を高精度の実験で確かめることが出来るのである。例えば、結晶形の最低エネルギー状態（平衡形）はどのような形かという問題を、緩和時間が何百年もかかる様な物質で調べることは難しいが、ヘリウムを用いれば1秒以内に緩和が完了するということが起こりえるのである。ステップ間相互作用と微斜面、ラフニング転移とステップ自由エネルギー、2次元核生成、渦巻き成長、樹枝状成長などの基礎的現象^{1,2}が、ヘリウムにおける実験でどの様に明らかにされてきたかを説明する。

一方で素早い結晶成長は、ヘリウム結晶のみで観測可能な特異な現象も生む。結晶成長・融解を繰り返しながら界面を伝播する結晶化波、Kelvin-Helmholtz 不安定性や Faraday 不安定性など、通常は液体表面でのみ存在すると思われがちな界面現象がヘリウム結晶には存在する。その他にも、界面における超音波の完全反射と界面質量、音響放射圧による結晶成長、負結晶の運動、多孔質中での間欠的成長、一軸性応力による結晶融解と Grinfeld 不安定性、量子核生成など興味深い界面現象が存在するので時間の許す限り紹介したい。

1 ヘリウムの相図と結晶成長の駆動力

通常物質は三重点以下の温度で液体は存在せず、固体は気体とのみ共存する。しかし質量の軽いヘリウムにおいては量子効果が顕著になり、三重点は消滅し絶対零度まで液体として存在できる。また不純物は壁に凍りつき影響しない。ヘリウム4では、低温で液体は超流動となり、温度にほぼ依存しない融解圧 25 気圧で hcp 固体と共存する（図1）。固体と液体のエントロピー差が少ないため、潜熱の発生なしに結晶化することが可能である。ヘリウム3においては、液体はフェルミ縮退し、300 mK で融解圧 29 気圧で bcc 固体と共存する（図2）。固体は核スピンの影響で、液体よりもエントロピーが大きく、300 mK 以下で融解曲線は負の傾きを持つ。

融解曲線上で両相の化学ポテンシャル μ は等しい。結晶成長の駆動力は、平衡状態から圧力と温度が ΔP 、 ΔT だけずれているとしたときの、両相の μ の差として、

$$\Delta\mu = \mu_l - \mu_s = \left[\frac{1}{\rho_l} - \frac{1}{\rho_s} \right] \Delta P - (s_l - s_s) \Delta T \quad (1)$$

と書ける。ここでは μ は単位質量あたりで、 ρ 、 s は密度、エントロピーである。ヘリウム4の場合、融解圧 P_m が温度によらないので、駆動力は過加圧量 $\Delta P = P - P_m$ を用いて

$$\Delta\mu = \left[\frac{1}{\rho_l} - \frac{1}{\rho_s} \right] \Delta P \quad (2)$$

と書ける。

結晶成長係数は、この駆動力によって成長する結晶表面の速度 v を用いて

$$v = K(T) \Delta\mu \quad (3)$$

と定義される。通常物質では、結晶化に伴う液体の流れや潜熱の輸送などの散逸過程が、結晶化の律速になることが多い。しかしヘリウム4では、液体は超流動であり、潜熱の発生もない。バルク中での輸送過程が無視でき、界面に衝突する素励起が結晶成長係数を決める。結晶成長抵抗は

$$\frac{1}{K(T)} = A_0 + B_0 T^4 + C_0 \exp\left(-\frac{\Delta}{kT}\right) \quad (4)$$

のように書ける。第1項は結晶の質に依存する温度によらない項で、第2、第3項はフォノンとロトンの散乱による寄与である。結晶成長係数は絶対零度に向かって発散的に大きくなる^{3,4,5,6,7}。

2 結晶の平衡形と成長形

体積一定という制限のもとでの表面自由エネルギーの積分値

$$U = \int \alpha(\vec{n}) dS \quad (5)$$

の最小値を与える結晶形を平衡形という。 α に異方性のない液体の場合は、当然球形が平衡形となる。しかし図3のようにある方向の自由エネルギーが小さくなれば、その方向の

面が大きくなるほうが表面エネルギーは小さくなる。表面エネルギーが図4のような内向きのカスプを持つ場合、その方向に平らな特異面が現れファセットと呼ばれる¹。ファセットはミクロなスケールで見ても、平らな面となっている。ファセットから十分傾いた面は、

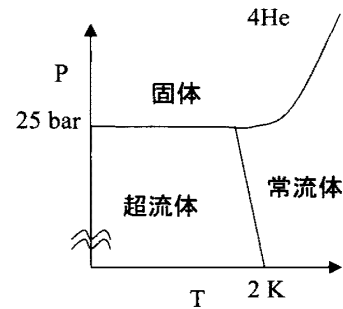


図 1

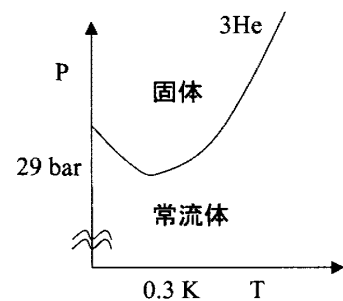


図 2



図 3

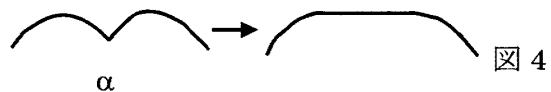


図 4

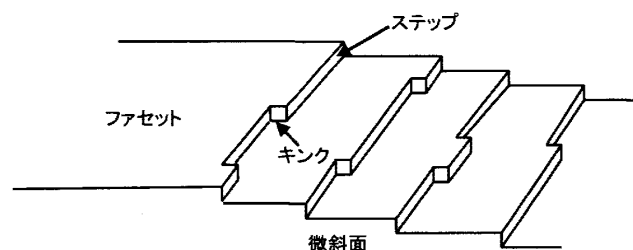


図 5

原子スケールでも凸凹と荒れており、ラフな面と呼ばれる。ファセット面から僅かに傾いて、原子スケールの段差（ステップと呼ぶ）が整列していると見なせる面を微斜面という（図 5）。ヘリウム 4 のラフニング転移温度は c ファセットが 1.3 K、a ファセットが 0.9 K と知られている⁶。

通常の物質では平衡形への緩和は非常に遅く、普通に見かける結晶形は成長形であることが多い。ラフな面は十分凸凹しており、原子がどこに付着してもエネルギーの上昇無しに、結晶格子に取り込まれる。ラフな面の成長は一般的に速い。ファセットでは、表面に 1 原子のみ付着した状態は、表面積が増えるため不安定である。ファセットの成長は、ステップに原子が付着することにより進行することが多く、その成長速度はラフな面に比べて著しく遅い。ラフな面は成長中に速く進行すると、ファセット面に追いついてしまう。結晶の成長中に見られる結晶形を成長形と呼ぶ。成長形ではファセットの面積が平衡形より大きくなるのが一般的であり、全ての面がファセットに覆われることもある。また拡散が律速の場合、樹枝状の美しい結晶が成長することがあるが、これも成長形である^{1,2}。

3 微斜面

Uwaha and Nozieres⁸に倣って、微斜面の形をステップの力学平衡という観点から見てみよう。微斜面のファセットからの傾き各を θ 、ステップ密度を n 、ステップの高さを d 、ステップ間隔を l とすると

$$\tan \theta = -nd = -d/l \quad (6)$$

となる（図 6）。表面自由エネルギー密度 $E(n)$ を n で展開すると、単一ステップの単位長さ当たりの自由エネルギー（ステップエネルギー） β を用いて

$$E(n) = \alpha + \beta n + E_{\text{int}} \quad (7)$$

と書ける。第 3 項はステップ間相互作用に起因する

項 $E_{\text{int}} = \phi n^p$ で、間隔の 2 乗に比例する $U_{\text{int}} \propto 1/l^2$

の様な斥力相互作用のときは、 $p = 3$ となる。ステ

ップ化学ポテンシャルは n で $E(n)$ を微分して

$$\eta(n) = \frac{dE}{dn} = \beta + \phi p n^{p-1} \quad (8)$$

となり、ステップ間の力は $F' = -\frac{\partial \eta}{\partial x}$ で与えられる。またステップに働く外力は $F = d\rho_s \Delta\mu$

と書ける。今、境界条件として壁のところでの化学ポテンシャルを η_w とし、各点で力のつりあい $F' + F = 0$ が成り立っているとすると、

$$\eta = \eta_w - F|x| \quad (9)$$

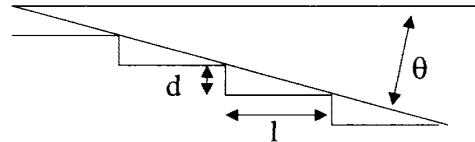


図 6

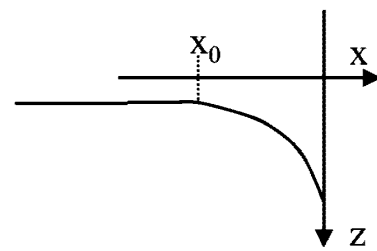


図 7

となる。 $x = x_0$ の位置で $n = 0$ となるとすれば、そこでは $\eta = \beta$ となるので、 $|x_0| = \frac{\eta_w - \beta}{F}$

となり、 $p = 3$ とすると

$$|x_0| = \frac{\eta - \beta - F|x|}{F} = \frac{3\phi n^2 - F|x|}{F} \quad (10)$$

が得られる。これから θ が x の関数として

$$\theta = -nd = \sqrt{\frac{Fd^2(x - x_0)}{3\phi}} \quad (11)$$

と求まる。したがって微斜面の高さはファセットの端から離れるに従い、

$$z = (x - x_0)\theta \propto (x - x_0)^{3/2} \quad (12)$$

と変化することが分かる (図7)。この $3/2$ 乗という指数は、Pokrovsky-Talapovの臨界指数として知られ、二次元基板上に吸着した原子の整合-不整合転移でも表れる普遍指数である。ヘリウム4の結晶からこの指数を決定しようという試みはあり、たとえばCarmi等は

$$z \propto \exp\{-(x - x_0)/\text{const.}\} \quad (13)$$

を見つけたとの報告もあるが、その由来は分かっていない¹⁰。

$U_{\text{int}} = \delta/l^2$ を与えるステップ間相互作用としては、弾性相互作用¹¹

$$U_{\text{int}} = \frac{\delta_{el}}{l^2} = \frac{\alpha^2}{El^2} \quad (14)$$

(ここでの E はヤング率) や、ステップ揺らぎの制限に由来するエントロピー的相互作用

$$U_{\text{int}} = \frac{\delta_s}{l^2} = \frac{\pi^2 (k_B T)^2}{6 \beta l^2} \quad (15)$$

がある¹²。この様な相互作用の詳細は表面物理の基礎的問題であり、後に述べるヘリウム4の結晶化波による表面スティッフネスの測定により、温度依存性を含めて調べられた^{13,14}。

4 ステップの幅

固体-気体 (あるいは固体-真空) の界面はシャープであり、特に幅と言うものは考える必要はない。強いて言えば固体の原子間隔 d 程度で密度変化している。このようなときは、ファセット上に出来たステップもシャープであり、距離 d で高さが変化していると考えられる (図8)。揺らぎが無視できる低温での単位長さ当たりのステップエネルギー β_0 は、表面エネルギーを α とすると、表面積の増加に対応して $\beta_0 \approx \alpha d$ となる。

固体-液体界面の場合、両者の密度差は固体-気体ほど小さくなく、界面は有限の幅をもって両相が緩やかに繋がると考えられる。このときステップの幅 ξ_0 と β_0 はどのようになるで

あろうか。界面は結晶格子の周期性を受けて、周期 d で大きさ V のピンングポテンシャルを感じるとしてみる（図 9）。今、幅 ξ のステップがファセット上にあるとすると、表面積の増加は

$$\sqrt{\xi^2 + d^2} - \xi \approx \frac{d^2}{\xi} \quad (16)$$

程度である。これに伴う表面エネルギーの増加は

$$\Delta E = \alpha \frac{d^2}{\xi} + V\xi \quad (17)$$

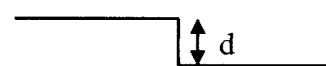


図 8

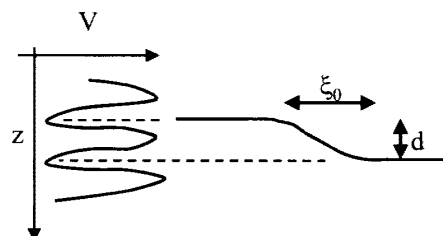


図 9

となり、 $\Delta E' = 0$ からステップの安定な幅 $\xi_0 \approx d\sqrt{\alpha/V}$ とエネルギー

$\beta_0 = \Delta E(\xi_0) \approx d\sqrt{\alpha V}$ が求まる¹¹。強磁性体の磁壁などと同様に、ピンングが弱いほど、

ステップの幅は広がる。 V を消去すれば、 $\beta_0 \xi_0 \approx \alpha d^2$ の関係が得られる。シャープな界面では $\xi_0 \approx d$ なので、 $\beta_0 \approx \alpha d$ となり前述の結果となる。このような場合を強結合界面と呼ぶ。一方、弱結合の場合は $\xi_0 > d$ とステップ幅は広がり、ステップエネルギーは $\beta_0 < \alpha d$ と表面エネルギーに比べ小さくなる。ヘリウム 4 では $\alpha \approx 0.2 \text{ erg/cm}^2$ 、 $\beta_0/d \approx 0.014 \text{ erg/cm}^2$ と測定され、弱結合が確かめられている⁶。

ヘリウム 3 はヘリウム 4 より質量が軽く、単純に考えるとより弱結合になると思われる。しかし実験事実はそうならなかった。100 mK 程度の高温ではステップエネルギーは小さく非常に結合は弱い¹⁵、0.5 mK の超低温では約 50 も大きくなり強結合になるというのである¹⁶。これは液体ヘリウム 3 の粘性が小さい高温ではステップの揺らぎが大きく幅が広がるが、低温ではフェルミ縮退が進み粘性が大きくなるため揺らぎが抑えられるためと説明されている。量子効果が揺らぎを抑制するという興味深い結果である。

ステップの密度が上がると、幅と間隔が同程度 $\xi_0 \approx l$ になると、ステップによる界面の記述が正しくなくなる。ファセット面から角度を大きくしていくと、ある臨界角 $\theta_c = 2.5^\circ$ 以上で界面エネルギーに異方性がなくなる、微斜面からラフな面へのクロスオーバーが見られている^{13,14}。

5 ステップ揺らぎとラフニング転移

Nozieres¹¹ に倣い、単一ステップの熱揺らぎを考える。平均的には x 方向へ伸びているステップを考え、その変位を y とする（図 10）。今ステップエネルギーの異方性を無視すれば、全エネルギーは

$$E = \beta_0 \int dx \sqrt{1 + \left(\frac{dy}{dx} \right)^2} \quad (18)$$

と書ける。揺らぎが小さいとして展開すると、エネルギーの増加分は

$$\Delta E = \int \frac{1}{2} \beta_0 y'^2 dx = \frac{1}{2} \beta_0 L \sum_k k^2 y_k^2 \quad (19)$$

となる。 L はステップ長である。各モードに $k_B T$ が等分配されると仮定すると、 $\beta_0 L k^2 \langle |y_k|^2 \rangle = k_B T$ である。したがって y の揺らぎの平均は

$$\langle y^2 \rangle = \sum_k \langle |y_k|^2 \rangle = \frac{L}{\pi} \int_{2\pi/L}^{\infty} dk \frac{k_B T}{\beta_0 L k^2} \approx \frac{L k_B T}{\beta_0} \quad (20)$$

となり、 \sqrt{LT} に比例して揺らぐことが分かる。

ステップ間の間隔が l で、これ以上はステップが揺らがないという制限をつけると(図 11)、それによる自由エネルギーの損からエントロピー的相互作用が出てくる。 $\langle y^2 \rangle \approx l^2$ と制限し、それに伴う下限の波数を k_c とすると、

$$\langle y^2 \rangle = \frac{L}{\pi} \int_{k_c}^{\infty} dk \frac{k_B T}{\beta_0 L k^2} \approx l^2 \quad (21)$$

から、

$k_c \approx \frac{k_B T}{\beta_0 l^2}$ と求まる。モードの数はおよそ $L k_c$ で、各モードが $k_B T$ 程度の自由エネルギー

を損するすると、前述のステップ相互作用エネルギーは

$$U_{\text{int}} \approx k_c k_B T \approx \frac{(k_B T)^2}{\beta_0 l^2} \quad (22)$$

程度と見積もられる。

次に $\langle y'^2 \rangle$ と同様にして、傾きの平均 $\langle y'^2 \rangle$ を求めてみる。

$$\Delta E = \int \frac{1}{2} \beta_0 y'^2 dx = \frac{1}{2} \beta_0 L \sum_k y_k'^2 \quad (23)$$

から、等分配 $\beta_0 L \langle |y_k'|^2 \rangle = k_B T$ を仮定すると、

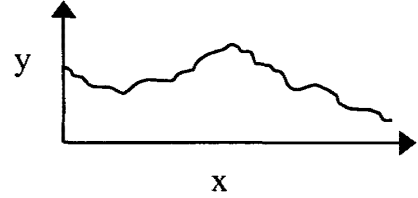


図 10

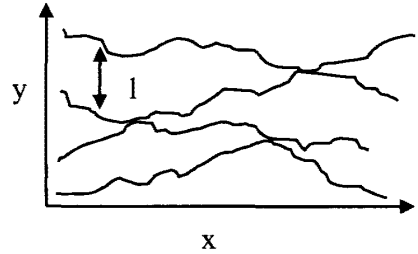


図 11

$$\langle y'^2 \rangle = \sum_k \langle |y_k|^2 \rangle = \frac{L}{\pi} \int_0^{k_{\max}} dk \frac{k_B T}{\beta_0 L} \approx \frac{k_{\max} k_B T}{\beta_0} \quad (24)$$

となる。最大波数はステップ幅程度 $k_{\max} \approx 1/\xi_0$ であるので

$$\langle y'^2 \rangle \approx \frac{k_B T}{\beta_0 \xi_0} \quad (25)$$

となる。

ステップの平均の傾きが 1 となるような特徴的な温度 T_R を考えてみよう。 $\langle y'^2 \rangle \approx 1$ とな

るから、 $k_B T_R \approx \beta_0 \xi_0 \approx \alpha d^2$ の関係が成り立つ。 $T > T_R$ ではステップは熱的に大きく揺らぎ、もはや前述の展開は成り立たない。ここではステップは自身と重なるほど激しく揺らぎ、ファセット面を覆いつくすこととなる。もはや平らなファセット面自体が定義できなくなり、結晶表面は凸凹と荒れた状態になる。これがラフニング転移と呼ばれる結晶平衡形の相転移である。

この特徴的な温度でステップ自由エネルギーに何が起こるかを、少し違う観点から見てみよう。長さ L のステップが幅 ξ_0 を単位として折れ曲がるとすれば、ステップの取りうる

配置の数は、 $W = p^{\frac{L}{\xi_0}}$ となる。 p は四角格子とすれば 3 であり、重なりを禁止すると実効的には 3 より小さくなるが、ここでは p のままにしておく。このときエントロピーは

$$S = k_B \log W = \frac{k_B L}{\xi_0} \log p \quad (26)$$

となり L に比例する。 ξ_0 より十分大きなスケールで定義される単位長さ当たりのステップ自由エネルギー β は

$$\beta L \equiv F = E - TS = L \left(\beta_0 - \frac{k_B T}{\xi_0} \log p \right) \quad (27)$$

となり、同様の特徴的な温度 $k_B T_R \approx \beta_0 \xi_0$ 以上の高温では $\beta < 0$ となる。ステップの生成エネルギーが負なわけであるから、平らなファセットはどんどん荒れることとなる。 β の有無は式 (7) の展開の 1 次の項の有無であり、表面エネルギーのカスの有無と対応している。カスがあるとファセットが現れ、消えると表面はラフになるのである。

ある温度 T で $\langle y'^2 \rangle \approx 1$ となる空間スケールを ξ とすると (図 12)、 ξ 以上のスケールではステップは実効的にはステップ自由エネルギー β を持っていると考えて、上と同様の考察が出来る。このとき $\xi \beta \approx k_B T$ となり、 ξ はステップの統計的幅と見なせる。これは熱揺らぎで $\xi \approx k_B T / \beta$ のスケールの 2 次元核がファセット上に出来ては消えると考えても良い。

そのようなとき、大きなスケールでは ξ の幅もったエネルギー β のステップとして振舞うと見なせる。 $T \rightarrow T_R$ のとき、式 (27) から $\beta \propto T_R - T \rightarrow 0$ なので、 $\xi \propto 1/(T_R - T) \rightarrow \infty$ と発散し、界面は荒れる。

今までの議論では、ステップの重なりを考慮していないが、繰り込み群を用いた計算では

$$\beta \propto \exp\left(-\frac{\text{const.}}{\sqrt{T_R - T}}\right), \xi \propto \exp\left(\frac{\text{const.}}{\sqrt{T_R - T}}\right) \quad (28)$$

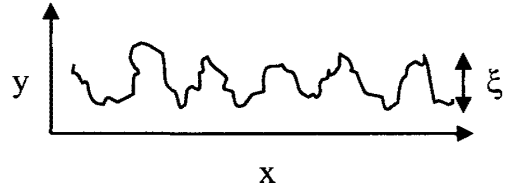


図 12

と緩やかな変化をする (図 13)。ラフニング転移は 2 次元 XY モデルと等価な Kosterlitz-Thouless 型の無限次の相転移であることが示されており、

$$k_B T_R = \frac{2}{\pi} \gamma d^2 \quad (29)$$

という普遍関係式がある。ここで γ は表面ステップネスである。式 (28) (29) はヘリウム 4 の c ファセットを使った実験で確かめられてお

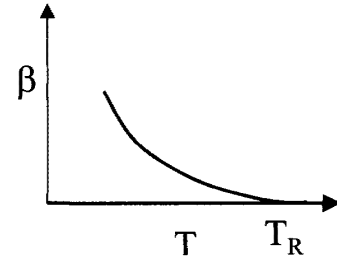


図 13

り、ラフニング転移が KT 転移であることが示されている^{17,18,19}。(ただし最近、らせん成長を考慮すると、文献 18, 19 の解析が consistent ではないとの報告がでた²⁰。)

十分低温で結晶の平衡形にファセットが何個表れるのかは、基本的問題である。Landau²¹ は長距離の原子間力が存在するとき、全ての有理指数面にファセットが現れることを示した (悪魔の階段)。Andreev と Parshin²² は十分に量子揺らぎの大きいヘリウム 4 結晶では、絶対零度でもファセットが表れない量子ラフニングという考えを提唱した。現実のヘリウム 4 結晶では 3 種のファセットが見つかっており、本当にこれ以上のファセットが表れないのか否かは長い間明らかでは無かった。しかし最近ゆっくりと成長中のヘリウム 4 結晶で、非常に小さな高次のファセットが多数見つかったとの報告がヘルシンキグループによりされた。計 14 種のファセットが見られ、まさに悪魔の階段的な振る舞いを示した²³。一方でヘリウム 3 は、前述のように強結合であるため高次ファセットは観測にかかりやすく、計 11 個のファセットの存在が同じヘルシンキグループにより示されていた²⁴。ただしヘリウム 3 の実験は、超低温の 0.55 mK において、結晶を可視化するという非常に困難な実験の末に見つかったものである。このような結晶平衡形の実験は、緩和時間が短いヘリウムを用いなければ難しく、金属微結晶の実験では高々数種のファセットが見られるのみである。ただし、液晶を用いた最近の実験で 60 種のファセットが見つかったという興味深い報告もある²⁵。

6 2次元核生成

ファセット面の成長には新たな結晶面を作る必要があるが、それには表面積の増加による有限のエネルギーバリアを超える必要がある。安定な大きさの2次元核がファセット上に生成する成長様式を2次元核生成機構という。ファセット上に半径 R の2次元核を作るときの自由エネルギーの増加は

$$F(R) = 2\pi R\beta - \pi R^2 d\rho_s \Delta\mu \quad (30)$$

となる（図14,15）。これは $R_c = \frac{\beta}{d\rho_s \Delta\mu}$ で最大値 $E_c = \frac{\pi\beta^2}{d\rho_s \Delta\mu}$ をとる。したがって熱励起による2次元核の生成率は

$$I \propto \exp\left\{-\frac{E_c}{k_B T}\right\} \quad (31)$$

となる。

生成率が十分小さく、面積 S のファセット面

を速度 v_s のステップが移動する時間 $t_1 \approx \frac{\sqrt{S}}{v_s}$ よ

り、核生成が起こるまでの時間 $t_2 = \frac{1}{IS}$ が長いと

き、ファセットの成長速度は

$$v = \frac{d}{t_2} = dIS \quad (32)$$

となり、面積に依存する。

生成率が十分大きく、 $t_1 \gg t_2$ が成り立つときは、多核成長となる。生成した核が成長し、隣接した核と合体するまでの平均寿命を t' 、それまでに掃引する平均面積を A とすると、

$t' \approx \frac{\sqrt{A}}{v_s} \approx \frac{1}{IA}$ となる。これから A を消去すれば $t' \approx \left(\frac{1}{Iv_s^2}\right)^{1/3}$ と得られる。ファセットの成

長速度は $v \approx \frac{d}{t'} \approx dv_s^{2/3} I^{1/3}$ となり、面積に依存しない²。

$$v \propto \exp\left\{-\frac{E_c}{3k_B T}\right\} = \exp\left\{-\frac{\pi\beta^2}{3d\rho_s \Delta\mu k_B T}\right\} \quad (33)$$

の関係を用いて、ラフニング温度直下での成長速度の測定からステップ自由エネルギーが求められ、式（28）のKT転移特有な温度依存性が確かめられた^{18,19}。

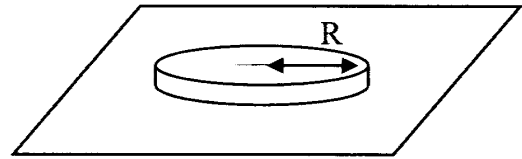


図 14

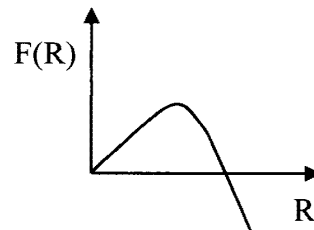


図 15

$\Delta\mu$ が十分大きくなり $k_B T \geq E_c$ となると、2次元核が大量に現れ、ファセットの消失が起こる。これはダイナミックラフニングと呼ばれる。

熱揺らぎではなく、トンネル効果によってバリアを超える量子核生成の確率も計算されており、

$$I_Q = \exp \left\{ -B \frac{\beta^{5/2}}{\hbar d \rho_s^{3/2} \Delta\mu^2} \right\} \quad (34)$$

と与えられる²⁶。熱的核生成よりも大きな $\Delta\mu$ 依存性を示すのが特徴である。実験的に到達可能な過加圧では生成率が小さく、今のところ明確な観測結果は無い。

準安定な液体から安定な結晶ができる際も、同様な核生成過程をとり、結晶成長の重要な分野となっている^{1,2}。多くの場合、壁にトラップされている微小結晶が加圧により、エネルギーバリアを超えて巨視的結晶に成長する不均一核生成であるが²⁷、上で述べた熱核生成から量子核生成へのクロスオーバーが観測されている^{28,29,30,31}。また最近収束音波の焦点で数 10 気圧の過加圧を作り、壁の影響を排除した均一核生成の報告もなされている³²。これらの現象は、単に結晶成長の分野に留まらず、低温における一次相転移一般の問題として興味深い。

7 らせん転位による渦巻き成長

ラフニング転移温度より十分低温になると、熱揺らぎによる 2 次元核生成は起こらなくなり、結晶表面に現れたらせん転位によって作られるステップの進行によりファセットが成長する。ステップが荒れていれば、原子がステップに付着する際のエネルギーバリアは存在せず、ステップは転位を中心にして渦巻きを形成する。中心付近でのステップの曲率半径は、そのときの $\Delta\mu$ における R_c より小さくならない。したがって渦巻きを形成するステップ間の距離 D は $D \approx R_c$ のオーダーになる (図 16)。より詳しいシミュレーションによれば

$$D \approx 19R_c = \frac{19\beta}{d\rho_s\Delta\mu} \quad (35)$$

となることが示されており、成長速度は

$$v = v_s \frac{d}{D} = v_s \frac{d^2 \rho_s \Delta\mu}{19\beta} \quad (36)$$

となる。ステップの易動度を η とすれば、ステップ速度は

$v_s = \eta\Delta\mu$ であり、

$$v = \frac{\eta d^2 \rho_s \Delta\mu^2}{19\beta} \quad (37)$$

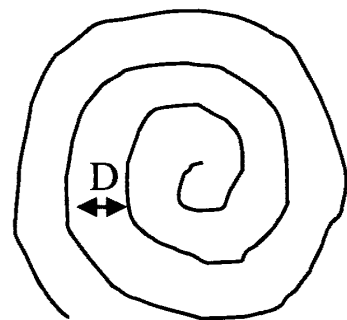


図 16

のように駆動力 $\Delta\mu$ の 2 乗に比例する^{1,2}。対向するステップが衝突すると、段差は消滅するので、 D が転位の間隔より十分小さければ、渦巻き成長の速度は転位の密度によらない。

この式は古典結晶でも成り立ち、ヘリウム4では高温で $\Delta\mu$ が比較的小さいときに観測されている。これからフォノンの散乱による $\eta \propto 1/T^3$ が確かめられた^{33,34}。

低温では η が大きくなり、 v_s が音速に近い 200 m/sまで大きくなると実験で示されている³⁴。なぜランダウの臨界速度を超えて、このような高速のステップ運動が可能なのか良く分からないが、実験結果はそうになっている。このような領域ではステップの運動エネルギー（後述の式（54））を考慮せねばならず式（37）からのずれが見える。一方、超低温の核スピン整列相（U2D2相）のヘリウム3結晶の成長過程では、成長速度は $\Delta\mu$ に比例し、また温度に依存しなかった^{35,36,37,38}。これは式（36）で v_s が一定の臨界速度に達しているとして説明できる。ステップ臨界速度はヘリウム4の場合と比較してはるかに小さく、およそ $v_s = 10$ cm/sでスピン波速度と一致した。これらの振る舞いは低温における結晶成長の量子限界をとらえたものと解釈できる。

8 結晶化波

Andreev³⁹に従い結晶化波²²の分散関係を見てみよう。今 $z=0$ に平衡状態の固液界面があり、それが振幅 $\zeta(x,t) = \zeta(t)\exp(ikx)$ で振動するとする。表面エネルギー $\alpha(\vec{n})$ が方向に依存することを考慮し \vec{n} を表面に垂直な方向とすると、表面 S で積分した全ポテンシャルエネルギーは $U = \int \alpha(\vec{n})dS$ となる。 ζ が十分小

さいとすると、 $n_z \approx 1$ 、 $n \approx \partial\zeta/\partial x$ となる。また

$$dS = dxdy \left[1 + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial\zeta}{\partial x} \right)^2 \right] \quad (38)$$

$$\alpha(\vec{n}) = \alpha(0) + \alpha' \frac{\partial\zeta}{\partial x} + \frac{1}{2} \alpha'' \left(\frac{\partial\zeta}{\partial x} \right)^2 \quad (39)$$

である。ここで $\alpha' = \partial\alpha/\partial n_x$ 、 $\alpha'' = \partial^2\alpha/\partial n_x^2$ である。

このときのポテンシャルエネルギーの増加は

$$\Delta U = \frac{S}{4} (\alpha + \alpha'') k^2 |\zeta|^2 = \frac{S}{4} \gamma k^2 |\zeta|^2 \quad (40)$$

となる。ここで $\gamma \equiv \alpha + \alpha''$ は表面スティッフネスであり、表面に異方性があるときは重要になる。

この界面運動が音速に比べて十分にゆっくりしているとすれば、これに伴う液体の流速は、 $\Delta\psi = 0$ を満たす速度ポテンシャルを用いて、 $v_l = \nabla\psi$ と書ける。界面での質量保存

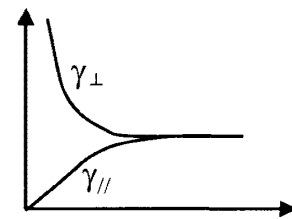


図 17

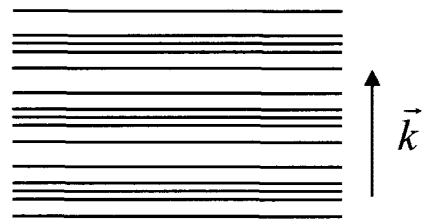


図 18

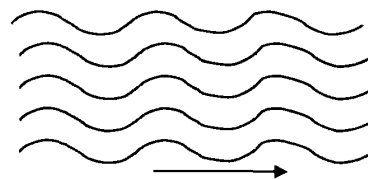


図 19

から境界条件は $\rho_l \frac{\partial \psi}{\partial z} \Big|_{z=0} = -\dot{\zeta}(\rho_c - \rho_l) = -\dot{\zeta} \Delta \rho$ となる。これを満たす解は

$\psi = \frac{1}{k} \exp(-kz + ikx) \frac{\Delta \rho}{\rho_l} \dot{\zeta}$ とすればよい。したがって界面の運動エネルギーは

$$T = \int dx dy \int_0^\infty dz \frac{\rho_l}{2} |\nabla \psi|^2 = \frac{S}{4} \frac{\Delta \rho^2}{\rho_l k} |\dot{\zeta}|^2 \quad (41)$$

となる。

また結晶成長係数の定義から $v = \dot{\zeta} = K \Delta \mu$ である。 \dot{M} を単位時間に固化する質量とすると、単位時間に散逸するエネルギーは $\dot{M} \Delta \mu$ となる。したがって全体のエネルギー散逸率は

$$\dot{E} = \int dx dy \dot{M} \Delta \mu = \int dx dy \rho_c \dot{\zeta} \Delta \mu = \frac{S}{2} \frac{\rho_c}{K} |\dot{\zeta}|^2 \quad (42)$$

となる。

これから界面の分散関係は、減衰振動との対応を考えれば

$$\omega^2 = \frac{\rho_l \gamma}{\Delta \rho^2} k^3 - \frac{\rho_l \rho_c}{\Delta \rho^2} \frac{i \omega k}{K} \quad (43)$$

と得られる。ここでは無視したが毛管長 $l = \sqrt{\gamma / \Delta \rho g}$ 以上の長波長になると重力の効果が効いてくる。この波は結晶化波と呼ばれ、液体の自由表面を伝わる波と同様の分散関係を持つ。液体の波と違うところは、散逸の起源が流体の粘性ではなく、界面での散逸である点である。結晶化波の減衰から結晶成長係数の温度依存性が精度良く測定された。もう一つの差異は、液体の表面張力には異方性はないが、結晶表面には異方性があることである。微斜面での結晶化波の分散の測定から、表面スティッフネスが測定され、ステップ間相互作用の詳細が明らかにされた。

ファセットに垂直な軸の微斜面への射影に平行に結晶化波が進むときの表面スティッフ

ネスを $\gamma_{||}$ とし、垂直に進むときを γ_{\perp} とすると、 $\gamma_{||} = \frac{6\delta}{d^3} \theta$ 、 $\gamma_{\perp} = \frac{\beta}{d} \frac{1}{\theta}$ となる¹¹ (図 17)。

これは微斜面に出来たステップ列に対して垂直あるいは平行に結晶化波が進行することに対応する。ステップ列に垂直に結晶化波が進むとき、界面の変形はステップ間距離の変調を伴うので、 $\gamma_{||}$ によってステップ間相互作用 δ が求まる (図 18)。一方、平行に進むときは、ステップ間隔は変化せずステップの蛇行により界面が変形するので、 γ_{\perp} はステップエネルギー β が求まる (図 19)。またファセット面に近づき θ が小さくなるにつれて両者の値は大きく変化し、 $\gamma_{||} \rightarrow 0$ 、 $\gamma_{\perp} \rightarrow \infty$ のように界面の振る舞いは非常に異方的となる。 θ を精度良く制御した結晶化波の実験により、このような界面異方性が明らかにされた^{13,14}。

超流動ヘリウム 3 と共存する固体ヘリウム 3 でも、超低温まで冷却すれば結晶成長係数が十分大きくなり、結晶化波が伝播すると期待できる。液体と固体では磁化が大きく異な

るため、界面の運動にはスピン超流動流が伴う。強磁場中のヘリウム3結晶化波において、運動エネルギーをスピン流が担う磁氣的結晶化波の存在がAndreev⁴⁰により予言されている。波の減衰が十分小さくなるには 100 μK 以下に冷却する必要がある、まだ実現されていない。

9 超音波

媒質 i の密度 ρ_i と音速 c_i を用いて音響インピーダンスを $z_i = \rho_i c_i$ と定義する。音波が伝わっており、その圧力振幅を δP 、媒質の振動速度を u とすると、音波の進行方向に対応して

$$u = \pm \frac{\delta P}{z} \quad (44)$$

の関係が成り立つことが知られている⁴¹。今、音波を媒質1から2へ入射し、界面への入射波を i 、反射波を r 、透過波を t とラベルを付ける（図20）。 δP と u が界面で連続という境界条件を用いると

$$u_t = u_i + u_r \quad (45)$$

$$\delta P_t = \delta P_i + \delta P_r \quad (46)$$

となる。透過係数、反射係数をそれぞれ $\tau \equiv \frac{\delta P_t}{\delta P_i}$ 、 $R \equiv \frac{\delta P_r}{\delta P_i}$ と定義すると、

$$\tau = 1 + R, \quad R = \frac{z_2 - z_1}{z_1 + z_2}, \quad \tau = \frac{2z_2}{z_1 + z_2} \quad (47)$$

と得られる。これらは古典的界面での（超）音波で成り立つ関係である。

界面での相転移を考えるとこの関係は変更を受ける。簡単のため、ここでは潜熱は0とする。単位時間単位面積に結晶化する質量を J とすると、質量保存則から

$$J = \rho_2(u_2 - v) = \rho_1(u_1 - v) \quad (48)$$

となり、

$$J = \rho_1 \rho_2 \frac{u_1 - u_2}{\rho_2 - \rho_1} \quad (49)$$

となる。また

$$J = \rho_1 K \Delta \mu = \rho_1 K \frac{\rho_2 - \rho_1}{\rho_1 \rho_2} \Delta P \quad (50)$$

となるため、両媒質の振動速度の跳びは

$$u_1 - u_2 = \chi \Delta P, \quad \chi \equiv \rho_1 K \left(\frac{\Delta \rho}{\rho_1 \rho_2} \right)^2 \quad (51)$$

となる。したがって式(45)に対応する境界条件は変更され、

$$(u_i + u_r) - u_t = \chi \Delta P \quad (52)$$

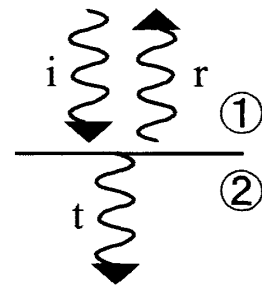


図 20

が新たな境界条件となる。圧力の連続は、そのまま成り立つとすれば、

$$R = \frac{z_2 - z_1 - z_1 z_2 \chi}{z_1 + z_2 + z_1 z_2 \chi}, \quad \tau = \frac{2z_2}{z_1 + z_2 + z_1 z_2 \chi} \quad (53)$$

と得られる。 $K \rightarrow \infty$ の極限では、 $\tau \rightarrow 0$ となり音波は界面で全て反射されることとなる^{42,43,44,45}。超音波による圧力振動に、界面での結晶化が追隨して起こり透過しなくなるためである。

高周波になると界面質量の効果により超音波が透過し始めるという現象も知られている。本来界面近傍では、密度、運動量、エネルギーなどは連続的に空間変化しているのであるが、上の議論ではシャープな界面があると想定し、界面の両側で密度と運動量が保存するとして境界条件を導いた（Gibbsの界面）。このときエネルギーが保存するためには、界面の運動エネルギーを考慮せねばならず、界面運動エネルギーの係数で定義される界面質量 σ が現れる。境界条件は $\Delta\rho\Delta P = \alpha\dot{J}$ となり、結晶

成長係数に周波数に依存する虚数成分 $K = \frac{\rho_2}{\sigma i\omega}$

が表れる。したがって $\frac{1}{\chi} = \frac{\rho_1\rho_2}{\Delta\rho^2} \left(\frac{\rho_2}{K} - i\sigma\omega \right)$ とな

り、高周波の極限で $\tau \rightarrow \left(\frac{\rho_2}{\Delta\rho} \right)^2 \frac{2\sigma\omega}{\rho_2 c_1}$ となり、有

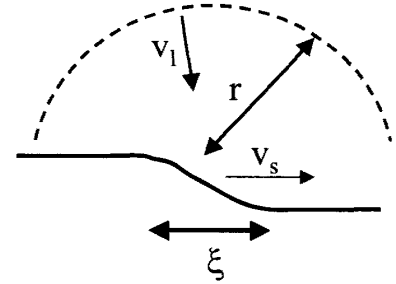


図 21

限の透過率となる⁴³。

次に微斜面の界面質量を考えてみる。速度 v_s で運動する単一ステップの運動エネルギーは、質量保存則 $\rho_l \pi r v_l = \Delta\rho dv_s$ から

$$E = \frac{\rho_l}{2} \int_{\xi}^R v_l^2 \pi r dr = \frac{d^2 \Delta\rho^2}{2\pi\rho_l} v_s^2 \log \frac{R}{\xi} \quad (54)$$

と得られるので（図 21）、ステップ質量は

$$\sigma_s = \frac{d^2 \Delta\rho^2}{2\pi\rho_l} \log \frac{R}{\xi} \quad (55)$$

となる。ステップ密度 n の微斜面では

$$v = n dv_s, \quad \frac{1}{2} n \sigma_s v_s^2 \equiv \frac{1}{2} \sigma v^2 \quad (56)$$

となるので

$$\sigma = \frac{\Delta\rho^2}{\pi\rho_l} \log \frac{R}{\xi} \quad (57)$$

と得られる⁴⁶。微斜面の傾きが小さくなり

ファセットに近づいていくと、 $n \rightarrow 0$ となり、界面質量は発散的に大きくなり、その様子

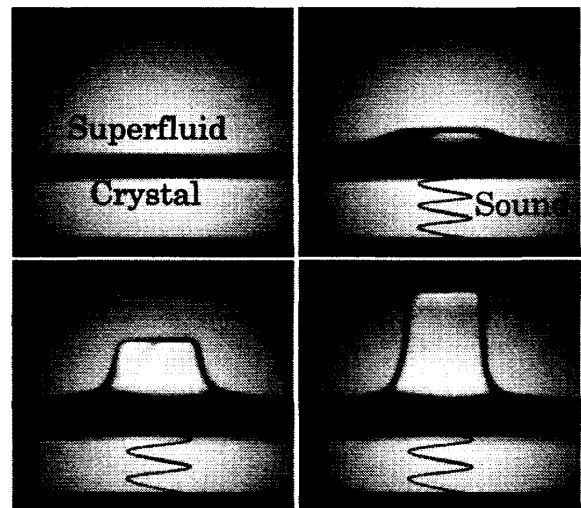


図 22

も実験で見られている⁴⁵。

10 音響放射圧

前述の超音波の完全反射は δP の1次の効果である。界面にかかる力は時間的に振動するので、音波の周期よりも十分長い時間平均すれば0となり、音波から一方向への力を受けることは無い。しかし δP の2次の効果まで考えると事情が変わってくる。音波の伝播による媒質の振動速度を u 、媒質の密度を ρ とすると、界面は媒質の運動量流によって $(\rho u)u$ に比例する力を受ける。これは速度の2乗に比例しているので時間平均しても0にならず、表面は一方向に力を受けることになる^{47,48}。これが音響放射圧と呼ばれる非線形音響効果である。振動中の媒質が吸収体表面の方向に向かう位相では、正の運動量を表面に与えて正の力を及ぼす。逆方向に向かう位相のときは表面から負の運動量を奪うことになり、これは正の運動量を与えることと等価であって、これも表面に正の力を及ぼすことになる。界面は一方向のみに力を受けるのである。ヘリウムの場合、フォノンの運動量により表面が押されると考えても良い。この非常に弱い力によって、超音波の向きに応じてヘリウムの結晶成長と融解を自由に駆動できることが、最近見つかった^{4,49,50,51}（図 22）。音響放射圧によって一次相転移が駆動された初めての例である。

音波による運動エネルギー密度を E_k 、全エネルギー密度を E 、媒質の音速を c 、パワー密度を I とすると、音波の完全吸収体表面が受ける音響放射圧 P は

$$P = \rho u^2 = 2E_k = E = \frac{\delta P^2}{\rho c^2} = \frac{I}{c} \quad (58)$$

と与えられる。

より一般的に、音速 c_1 、 c_2 をもった媒質1と2の界面に媒質1から音波を入射したときの音響放射圧は、入射波、反射波、透過波のエネルギー密度をそれぞれ E_i 、 E_r 、 E_t とすると、それらのバランスによって

$$P = E_i + E_r - E_t \quad (59)$$

と与えられる。音響放射圧は界面を挟んでのエネルギー密度（あるいは運動量流密度）の差によって働くのである。この式は界面での音波の反射係数 R を用いると

$$P = E \left\{ 1 - \frac{c_1}{c_2} + R^2 \left(1 + \frac{c_1}{c_2} \right) \right\} \quad (60)$$

と書ける⁴⁷。このときの結晶成長の駆動力は $\Delta\mu = \frac{P}{\rho_c}$ となることが知られている。パルス

幅 τ の間に放射圧 P で超音波の方向に進む変位は

$$h = v\tau = K(T) \frac{P}{\rho_c} \tau \quad (61)$$

と与えられる。 $R \approx 0$ で $c_1 > c_2$ のとき $P < 0$ となり、音波の方向と逆向きに音響放射圧が

働くことがある点を指摘しておきたい。これは反射率が小さく音波がほとんど透過する状況で媒質2の音速が遅いと、媒質2側のエネルギー密度が媒質1よりも大きくなることによる。

固体側から照射した場合、式(60)を見れば反射係数の大きな低温では $P > 0$ となり、放射圧の方向は音波の方向と一致し成長が駆動される。一方、高温域では固体と液体で音響インピーダンスが大きくは変わらないために $R(T)$ は小さく、また液体より固体のほうが音速は早いために ($c_1 > c_2$)、 $P < 0$ となり放射圧の方向が音波の向きと逆になる。この様な結晶成長から融解への逆転現象は実験的にも観測された^{49,50}。ヘリウム特有の $R(T)$ の大きな温度依存性で、観測結果は定性的に説明できる。

1.1 界面不安定性

Grinfeld 不安定性

大きな固体と液体が平衡状態にあり界面が重力で水平面となる状況で、固体にのみ界面に平行に一軸的な応力 σ_0 をかけたとき何が起こるであろうか。固体の弾性エネルギーは

$$\Delta\mu = \frac{(1-\sigma_p^2)\sigma_0^2}{2\rho_s E}$$

だけ上昇するので、実は固体が融解する。ここでは σ_p をポアッソン比、

E をヤング率とする。界面の位置が δh だけ下がったことによる重力エネルギーの増加

$$\Delta\mu = \frac{\Delta\rho g \delta h}{\rho_s}$$

とバランスするところまで固体が融ける。融解量は $\delta h = \frac{(1-\sigma_p^2)\sigma_0^2}{2\Delta\rho g E}$ となり、

σ_0 の2乗に比例する。つまり固体を押しても、引いても固液界面が下がることになる。微小なエネルギーでも相転移が素早く起こるヘリウム結晶で、この現象が確認された^{52,53}。エネルギーのバランスを考えれば当たり前のようでもあるが、ゴムの様な物体では押せば横方向に膨らみ、引けば縮むことを思うと、普段目にする現象とは大きく異なる。

この一軸応力が大きくなり臨界値を超えると、平らな界面が不安定化を起し波打つ。

これはGrinfeld不安定性と呼ばれ^{54,55}、臨界応力 $\sigma_0^* = \sqrt{\frac{\alpha E q^*}{1-\sigma_p^2}}$ で、毛管長で決まる波数

$$q^* = \sqrt{\frac{\Delta\rho g}{\alpha}}$$

のモードが不安定化する。これは応力による結晶化波のソフト化とも考えるこ

とが出来る。アスファルトのひび割れなど、応力による表面の不安定化は非常に普遍的な現象であるが、ヘリウムを用いれば系統的研究が可能となる^{52,53}。

Kelvin-Helmholtz不安定性

水平な固液界面に平行に超流動流を流すと、不安定化を起し界面が波打つ。海で風が吹くと海面が波立つのと同じ現象で、Kelvin-Helmholtz不安定性と呼ばれる。臨界速度は

$v_c = \left(\frac{4\alpha\Delta\rho g}{\rho_l^2} \right)^{1/4}$ となり、ヘリウムの場合 $v_c \approx 4 \text{ cm/s}$ となる⁵⁶。この不安定性に関わるの

ではないかという実験はいくつかあるが^{57,58}、確定的なものはまだない。液体表面と違い、固液界面には異方性があること、結晶成長係数が大きく温度変化することなどが、不安定性や不安定モードの発展にどのような影響を持つのかは興味深い、安定した超流動流を作る実験の難しさもあってまだ分かっていない。

Faraday不安定性

液体の入った容器をある振動数 2ω で鉛直方向に振動させると、半分の周波数 ω の波が励起されることが知られており、Faraday不安定性と呼ばれている。Mathieu方程式で記述されるパラメーター共振現象で、同様の現象がヘリウム固液界面でも予言されていた。鉛直振動は重力下速度を $g(t) = g(1 + \varepsilon \cos 2\omega t)$ と変調することと等価であり、臨界加速度 ε_c 以上で平らな界面が不安定化する。ヘリウム結晶表面の場合、 $\varepsilon_c = \frac{2\rho_s\omega}{\Delta\rho gK}$ となり、結晶成長

係数を求める新しい方法として提唱された⁵⁹。ごく最近この不安定性が観測されたが⁶⁰、100 mK程度の極低温を維持しつつ、容器を機械的に振動させることは非常に困難で系統的实验はまだない。異方性のある結晶表面でどのような不安定パターンが表れるかは興味深い。

Mullins-Sekerka不安定性と樹枝状結晶

拡散の影響で進行中の界面が不安定化する現象は良く見られ、Mullins-Sekerka不安定性と呼ばれる^{1,2}。平らな界面の一部が揺らいで突出すると、その部分で拡散場の傾斜が大きくなり、ますます揺らぎが増幅されることによる。雪の結晶などで見られる樹枝状結晶が生成する原因となる機構である。結晶化の潜熱が大きい、高温域のヘリウム3結晶でも樹枝状結晶が見られる⁶¹。しかし他の樹枝状結晶でよく見られる横枝が、ヘリウム3においては見られないという特徴がある。これは横枝の生成には熱揺らぎが効いていることを示唆する結果である。

また高磁場中で急速融解させたヘリウム3結晶表面も不安定化することが見られた。このような実験は、磁化の大きな固体を液体の長い磁気緩和時間より十分速く融解させることにより、偏極したフェルミ液体を作る目的で始められた。液体と固体の大きな磁化の差を、磁気拡散で輸送することとなるが、その際に平らな界面が不安定化し凸凹が現れた。磁場勾配をかけたNMR測定により、界面近傍の磁化が増大することが示された^{62,63}。

負結晶の浮力による上昇

結晶中に閉じ込められた液胞や気泡の形にファセットが現れることがあり負結晶と呼ばれる。熱や超音波を結晶内部で与えて、ヘリウム結晶中に負結晶が生じ、浮力で上昇して

いくことが観測されている^{5,64}。ちなみに負結晶中は超流動液体で満たされている。負結晶の壁からの離脱過程は、Rayleigh-Taylor不安定性と関係深いと思われる。風呂の天井に付いた水滴が、重さに耐え切れず落下する過程の逆である。液体との違いは結晶の異方性である。



図 23

ラフニング温度より高温の負結晶は表面エネルギーに異方性がないため球形であり、結晶中を真上に上昇していった。重力を駆動力として、負結晶上部が融解し下部で結晶化するというモデルを立てると半径 R の負結晶の上昇速度は $V = K \frac{\Delta \rho g R}{\rho_c}$ と書ける。実験で見られた上昇速度と比較すると温度依存性まで含めて妥当な一致が得られた。

c ファセットのラフニング温度以下まで冷却すると、負結晶の形態は一変した (図 23)。母結晶のファセットが、負結晶上部に現れ、ファセット面と平行に斜めに上昇した。また a ファセットのラフニング転移温度以下では、負結晶の速度が減少した。温度を下げるにしたがって負結晶の形態と運動が逐次的に異方性を増していく様子が観測できた。また上羽らは底面からの負結晶の離脱過程を、結晶成長係数を取り入れた形で定式化し、実験で観測された球形負結晶の直径が 2.8 mm 程度であることの説明を与えた⁶⁵。

おわりに

固体の表面エネルギーが異方性を持つというような基本的な性質でさえ、ヘリウム以外の物質では定量的測定が難しい。このような表面の基礎物性を、結晶化波のような通常の常識ではありえない現象を用いて精密測定できるところが、ヘリウム研究の楽しいところである。超流動流と結合した異方的界面の運動、不規則媒質中での動的相転移⁶⁶、結晶の乱れと超固体性の関連^{67,68}等、現在でも興味深い現象の報告が続いている。新しいアイデアを持って研究に取り組めば、思いも付かない振る舞いを見せるシステムであるので、その面白さの一端でも伝えることが出来ばうれしく思う。

謝辞

本稿を読んで有益なご意見を頂いた東京工業大学の奥田雄一教授、村川智博士、特別講義などで結晶成長について教えていただいた名古屋大学の上羽牧夫教授に感謝いたします。

参考文献

結晶成長一般の物理についての最近の教科書として

1. 上羽牧夫、結晶成長の仕組みを探る-その物理的基礎-、共立出版株式会社
2. 齋藤幸夫、結晶成長、裳華房

などがある。ヘリウムの結晶成長についての日本語の解説では

3. 上羽牧夫、固体物理 **20**, 431 (1985).

4. 阿部陽香、野村竜司、奥田雄一、固体物理 **41**, 669 (2006).

5. 野村竜司、奥田雄一、パリティー, **21**, 08, 52 (2006).

ヘリウムの結晶成長についての最近のレビューでは

6. S. Balibar, H. Alles, and A. Ya. Parshin, *Rev. Mod. Phys.* **77** 317 (2005).

7. Y. Okuda and R. Nomura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 111009 (2008).

を挙げておく。

8. M. Uwaha and P. Nozières, in *Morphology and Growth Unit of Crystals* ed. I. Sunagawa (Terra Scientific Publishing, Tokyo, 1989) p. 17.

9. Y. Carmi, S. G. Lipson, and E. Polturak, *Phys. Rev. B* **36**, 1894 (1987).

10. A. V. Babkin, H. Alles, P. J. Hakonen, A. Y. Parshin, J. P. Ruutu, and J. P. Saramäki, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 3324 (1995).

11. P. Nozières, *Solids Far From Equilibrium*, Chap. 1. (Ed. by C. Godrèche).

12. Y. Akutsu, N. Akutsu, and T. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 424 (1988).

13. E. Rolley, E. Chevalier, C. Guthmann, and S. Balibar, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 872 (1994).

14. E. Rolley, C. Guthmann, E. Chevalier, and S. Balibar, *J. Low Temp. Phys.* **99**, 851 (1995).

15. I. A. Todoshchenko, H. Alles, H. J. Junes, A. Ya. Parshin, and V. Tsepelin, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 175301 (2004).

16. V. Tsepelin, H. Alles, A. Babkin, R. Jochemsen, A. Ya. Parshin, and I. A. Todoshchenko, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 045302 (2002).

17. A. V. Babkin, D. B. Kopeliovich, and A. Ya. Parshin, *Sov. Phys. JETP*, **62**, 1322 (1985).

18. P. E. Wolf, F. Gallet, S. Balibar, E. Rolley, and P. Nozières, *J. Phys. (Paris)* **46**, 1987 (1985).

19. F. Gallet, S. Balibar, and E. Rolley, *J. Phys. (Paris)* **48**, 369 (1987).

20. I. A. Todoshchenko, H. Alles, H. J. Junes, and A. Ya. Parshin, *AIP Conf. Proc.* **850**, 24th International Conference on Low Temperature Physics, 337 (2006).

21. L. D. Landau, *The Equilibrium Form of Crystals*, in *Collected Papers* (1965).

22. A. F. Andreev and A. Y. Parshin, *Sov. Phys. JETP* **48**, 763 (1978).

23. I. A. Todoshchenko, H. Alles, H. J. Junes, M. S. Manninen, and A. Ya. Parshin, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 255302 (2008).

24. H. Alles, V. Tsepelin, A. Babkin, R. Jochemsen, A. Y. Parshin, and I. Todoshchenko, *J. Low Temp. Phys.* **124**, 189 (2001).

25. P. Pieranski, P. Sotta, D. Rohe, and M. Imperor-Clerc, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2409 (2000).
26. M. Uwaha, *J. Low Temp. Phys.* **52**, 15 (1983).
27. S. Balibar, T. Mizusaki, and Y. Sasaki, *J. Low Temp. Phys.* **120**, 293 (2000).
28. J. P. Ruutu, P. J. Hakonen, J. S. Penttila, A. V. Babkin, J. P. Saramaki, and E. B. Sonin, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2514 (1996).
29. V. L. Tsymbalenko, *J. Low Temp. Phys.* **121**, 53 (2000).
30. Y. Sasaki and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **110**, 491 (1998).
31. H. Abe, F. Ogasawara, Y. Saitoh, T. Tatara, S. Kimura, R. Nomura, and Y. Okuda, *Phys. Rev. B* **71** 214506 (2005).
32. R. Ishiguro, F. Caupin, and S. Balibar, *Europhys. Lett.* **75**, 91 (2006).
33. P. Nozières and M. Uwaha, *J. Phys. (Paris)* **48**, 389 (1987).
34. J. P. Ruutu, P. J. Hakonen, A. V. Babkin, A. Y. Parshin, and G. Tvalashvili, *J. Low Temp. Phys.* **112**, 117 (1998).
35. R. Nomura, H. H. Hensley, T. Matsushita, and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **94**, 377 (1994).
36. H. Akimoto, R. van Rooijen, A. Marchenkov, R. Jochemsen, and G. Frossati, *Physica B* **255**, 19 (1998).
37. V. Tsepelin, H. Alles, A. Babkin, R. Jochemsen, A. Y. Parshin, and I. A. Todoshchenko, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 045302 (2002).
38. Y. Kawaguchi, T. Ueno, Y. Kinoshita, Y. Sasaki, and T. Mizusaki, *J. Low Temp. Phys.* **126**, 27 (2002).
39. A. Andreev, in *Progress in Low Temperature Physics*, edited by D. F. Brewer (North-Holland, Amsterdam, 1982), Vol. VIII.
40. A. F. Andreev, *JETP Lett.* **58**, 715 (1993).
41. ランダウ・リフシッツ、流体力学。
42. B. Castaing and P. Nozières, *J. Phys. (Paris)* **41**, 701 (1980).
43. M. Uwaha and P. Nozières, *J. Phys. (Paris)* **46**, 109 (1985).
44. B. Castaing, S. Balibar, and C. Laroche, *J. Phys. (Paris)* **41**, 897 (1980).
45. J. Amrit, P. Legros, and J. Poitrenaud, *J. Low Temp. Phys.* **101**, 971 (1995).
46. A. M. Kosevich and Y. A. Kosevich, *Sov. J. Low Temp. Phys.* **7**, 394 (1981).
47. F. E. Borghis, *Rev. Mod. Phys.* **25**, 653 (1953).
48. M. Sato and T. Fujii, *Phys. Rev. E* **64**, 026311 (2001).
49. R. Nomura, Y. Suzuki, S. Kimura, and Y. Okuda, *Phys. Rev. Lett.* **90** 075301 (2003).
50. R. Nomura, S. Kimura, F. Ogasawara, H. Abe, and Y. Okuda, *Phys. Rev. B* **70** 054516 (2004).

51. H. Abe, Y. Saitoh, T. Ueda, F. Ogasawara, R. Nomura, Y. Okuda, and A. Ya. Parshin, J. Phys. Soc. Jpn. **75** 023601(2006).
52. R. H. Torii and S. Balibar, J. Low Temp. Phys. **89**, 391 (1992).
53. S. Balibar, D. O. Edwards, and W. F. Saam, J. Low Temp. Phys. **82**, 119 (1991).
54. M. A. Grinfeld, Sov. Phys. Dokl. **31**, 831 (1986).
55. M. A. Grinfeld, J. Nonlinear Sci. **3**, 35 (1993).
56. M. Uwaha and P. Nozières, J. Phys. (Paris) **47**, 263 (1986).
57. L. A. Maksimov and V. L. Tsymbalenko, JETP **95**, 455 (2002).
58. H. Abe, M. Morikawa, T. Ueda, R. Nomura, and Y. Okuda, J. Low Temp. Phys. **150**, 289 (2008).
59. W. van Saarloos and J. D. Weeks, Phys. Rev. Lett. **74**, 290 (1995).
60. H. Abe, T. Ueda, M. Morikawa, Y. Saitoh, R. Nomura, and Y. Okuda, Journal of Physics: Conference Series, **92**, 012157 (2007).
61. E. Rolley, S. Balibar, and F. Graner, Phys. Rev. E **49**, 1500 (1994).
62. A. Marchenkov, H. Akimoto, R. van Rooijen, R. Jochemsen, and G. Frossati, Phys. Rev. Lett. **83**, 4598 (1999).
63. H. Akimoto, R. van Rooijen, R. Jochemsen, G. Frossati, and W. van Saarloos, Phys. Rev. Lett. **85**, 1894 (2000).
64. K. Yoneyama, R. Nomura, and Y. Okuda, Phys. Rev. E **70**, 021606 (2004). (Erratum, Phys. Rev. E **73**, 049901 (2006).)
65. M. Mukai and M. Uwaha, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 054601 (2006).
66. R. Nomura, A. Osawa, T. Mimori, K. Ueno, H. Kato, and Y. Okuda, Phys. Rev. Lett. **101**, 175703 (2008).
67. S. Sasaki, F. Caupin, and S. Balibar, Phys. Rev. Lett. **99**, 205302 (2007).
68. S. Sasaki, R. Ishiguro, F. Caupin, H. J. Maris, and S. Balibar, Science **313**, 1098 (2006).